



03/29/01

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

NONPROVISIONAL PATENT APPLICATION

OLIFF & BERRIDGE, PLC
P.O. Box 19928
Alexandria, Virginia 22320
Telephone: (703) 836-6400
Facsimile: (703) 836-2787

Attorney Docket No.: 109120

Date: March 29, 2001

BOX PATENT APPLICATION

Customer Number: 25944

NONPROVISIONAL APPLICATION TRANSMITTAL
RULE §1.53(b)

Director of the U.S. Patent and Trademark Office
Washington, D.C. 20231

Sir:

Transmitted herewith for filing under 37 C.F.R. §1.53(b) is the nonprovisional patent application

For (Title): METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURING CERAMICS, SEMICONDUCTOR
DEVICE AND PIEZOELECTRIC DEVICE

By (Inventors): Eiji NATORI

- ☒ Formal drawings (Figs. 1-3; 3 sheets) are attached.
☐ Use Figure _____ for front page of Publication.
☐ A Declaration and Power of Attorney is filed herewith.
☐ An assignment of the invention to SEIKO EPSON CORPORATION is filed herewith.
☐ An Information Disclosure Statement is filed herewith.
☐ Entitlement to small entity status is hereby asserted.
☐ A Preliminary Amendment is filed herewith.
☐ Please amend the specification by inserting before the first line the sentence --This nonprovisional application claims the benefit of U.S. Provisional Application No. _____, filed _____.--
☒ Priority of foreign application No. 2000-91604 filed March 29, 2000 in JAPAN is claimed (35 U.S.C. §119).
☐ A certified copy of the above corresponding foreign application(s) is filed herewith.
☐ This application is NOT to be published under 35 U.S.C. 112(b). The undersigned attorney or agent hereby certifies that the invention disclosed in this application has not been and will not be the subject of an application filed in another country, or under a multilateral international agreement, that requires publication at eighteen months after filing.
☒ The filing fee is calculated below:

CLAIMS IN THE APPLICATION AFTER ENTRY OF
ANY PRELIMINARY AMENDMENT NOTED ABOVE

FOR:	NO. FILED	NO. EXTRA
BASIC FEE		
TOTAL CLAIMS	33 - 20	= 13
INDEP CLAIMS	2 - 3	= 0
<input type="checkbox"/> MULTIPLE DEPENDENT CLAIMS PRESENTED		

* If the difference is less than zero, enter "0".

SMALL ENTITY

RATE	FEE
	\$ 355
x 9 =	\$
x 40 =	\$
+ 135 =	\$
TOTAL	\$

OR
OR
OR
OR
OR
OROTHER THAN A
SMALL ENTITY

RATE	FEE
	\$ 710
x 18	\$ 234
x 80	\$
+ 270	\$
TOTAL	\$ 944

- ☒ Check No. 117644 in the amount of \$944.00 to cover the filing fee is attached. Except as otherwise noted herein, the Director is hereby authorized to charge any other fees that may be required to complete this filing, or to credit any overpayment, to Deposit Account No. 15-0461. Two duplicate copies of this sheet are attached.

Respectfully submitted,

James A. Oliff
Registration No. 27,075

Thomas J. Pardini
Registration No. 30,411

Inventor Information

Inventor One Given Name:: Eiji
Family Name:: NATORI
City of Residence:: Suwa-shi
State or Prov. of Residence:: Nagano-ken
Country of Residence:: JAPAN

Correspondence Information

Correspondence Customer Number:: 25944
Name Line One:: Oliff & Berridge PLC
Address Line One:: P.O. Box 19928
City:: Alexandria
State or Province:: VA
Postal or Zip Code:: 22320
Telephone:: (703) 836-6400
Fax:: (703) 836-2787
Electronic Mail:: commcenter@oliff.com

Application Information

Title Line One:: METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURING
Title Line Two:: CERAMICS, SEMICONDUCTOR DEVICE AND
Title Line Three:: PIEZOELECTRIC DEVICE
Total Drawing Sheets:: 3
Docket Number:: 109120

Prior Foreign Applications

Foreign Application One:: 2000-91604
Filing Date:: March 29, 2000
Country:: JAPAN
Priority Claimed:: YES

FILED "336T60

セラミックスの製造方法およびその製造装置、ならびに半導体装置および圧電素子

本願では、2000年3月29日に出願された日本特許出願2000-91604の内容がそのまま含まれる。

5

技術分野

本発明は、酸化膜、窒化膜および強誘電体膜などのセラミックスの製造方法およびその製造装置、ならびに強誘電体膜を用いた半導体装置および圧電素子に関する。

10 背景

強誘電体の成膜法には、溶液塗布法、スパッタ法、レーザアブレーション法、MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 法、LSMCD (Liquid Source Misted Deposition) 法などがある。そして、高集積化が必要とされる半導体装置の分野では、MOCVD法およびLSMCD法が注目されている。特に、強誘電体メモリ装置のキャパシタを構成する強誘電体膜の形成では、LSMCD法が注目されている。これは、LSMCD法は、MOCVD法に比べて、膜の組成制御がしやすく、ウェハ間およびロッド間のバラツキが小さく、かつ安定していることによる。

しかし、LSMCD法によって、強誘電体キャパシタを有する半導体装置を形成する場合には、原料種のみスト（微粒子）の径が通常0.1~0.3 μmの分布を有するため、半導体装置の0.5 μm以下のデザインルールには適用できない。そして、原料種のみスト径を半導体装置のデザインルールに適用できるように微細化すると、成膜速度が大幅に低下し、ボトムあるいはサイドのカバレッジが良くない。

また、強誘電体材料であるPZT (Pb (Zr, Ti) O₃) やSBT (SrBi₂ Ta₂O₉) などを形成する場合には、高いプロセス温度を必要とする。たとえば、通常、PZTの成膜においては600~700℃、SBTの成膜においては650~800℃の温度を必要とする。これらの強誘電体の特性は、その結晶性に依存し、結晶性が高いほど一般的に優れた特性を有する。

強誘電体膜を含むキャパシタ（強誘電体キャパシタ）を備えた半導体装置、たとえ

ば強誘電体メモリ装置においては、強誘電体の結晶性が各特性、たとえば残留分極特性、抗電界特性、ファティーグ特性およびインプリント特性などに顕著に影響を与える。そして、強誘電体は多元系でかつ複雑な構造のペロブスカイト結晶構造を有するため、結晶性のよい強誘電体を得るためには、結晶化の時に原子が高いマイグレーションエネルギーを有することが必要である。そのため、強誘電体の結晶化には、高いプロセス温度を必要とする。

- しかしながら、強誘電体膜のプロセス温度が高いと、強誘電体メモリ装置にダメージを与えやすい。すなわち、強誘電体は結晶化のために酸素雰囲気での高温処理が必要となる。その高温処理の際に、ポリシリコンや電極材料が酸化し絶縁層が形成されると、この絶縁層によって強誘電体キャパシタの特性が劣化する。また、PZTあるいはSBTの構成元素であるPb、Biは拡散しやすく、これらの元素が半導体デバイス側に拡散することにより、その劣化を招く。これらの劣化は、強誘電体膜のプロセス温度が高いほど顕著であり、かつ高集積化された半導体装置（たとえば1Mビット以上の集積度の半導体装置）であるほど顕著となる。
- 15 そのため、現状では、強誘電体キャパシタは、強誘電体膜のプロセス温度が高くても比較的影響の少ない集積度（たとえば1～256kビット）の半導体装置に適用している。しかし、現在、DRAM、フラッシュメモリ等では、すでに16MビットからGビットの集積度が要求され、そのため、強誘電体メモリ装置の適用分野が限定されている。一方、強誘電体のプロセス温度を低くして、上述したような高温の酸素雰囲気によるデバイスの劣化を防止すると、強誘電体膜の結晶性が低下する。その結果、強誘電体キャパシタの残留分極特性が低下し、ファティーグ特定、インプリント特性
- 20 ならびにリテンション特性なども低下する。

サマリー

- 25 本発明の目的は、プロセス温度を低下させながら、結晶性などの特性が高いセラミックスを得ることができる製造方法、およびセラミックスの製造装置を提供することにある。

本発明の他の目的は、本発明の方法によって得られたセラミックスを用いた半導体装置ならびに圧電素子を提供することにある。

(A) 製造方法

本発明に係る製造方法は、少なくともセラミックスの原材料の一部となる原料種の
5 微粒子と、活性種と、を混合した後に基体に供給して、該基体上にセラミックス膜を形成する工程を含む。

この製造方法によれば、高い運動エネルギーを持った活性種と、原料種の微粒子とを、基体に接触させる前に混合することで、原料種の微粒子に運動エネルギーを与えた状態で、これを基体に堆積させることができる。そのため、前記原料種の微粒子が、
10 好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以下の小さい径を有する場合でも、成膜速度を制御でき、ボトムあるいはサイドのカバレッジが良好なセラミックス膜を形成できる。

また、前記活性種によって前記微粒子にエネルギーを与えることにより、膜の原子のマイグレーションエネルギーを高めることができる。その結果、活性種を供給しない場合に比べて、低温のプロセス温度で、たとえば結晶性などの膜質の優れたセラミックスを形成できる。
15

さらに、本発明の製造方法によって得られる膜は、微細かつ均一な分布の空乏を有するので、原子がマイグレーションしやすい。そのため、結晶化に必要なエネルギーを少なくでき、この点からもプロセス温度の低下を達成できる。

20 以上のことから、本発明の製造方法を強誘電体の形成に適用した場合には、 500°C 以下のプロセス温度で、結晶性の高い強誘電体を得ることができる。たとえば、SBTの場合には、好ましくは 600°C 以下、より好ましくは 450°C 以下の温度で、PZTの場合には、好ましくは 500°C 以下、より好ましくは 450°C 以下の温度で、BST ($(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$) の場合には、好ましくは 500°C 以下、より好ましく
25 くは 450°C 以下の温度で、結晶化が可能である。

本発明に係る製造方法は、さらに以下の各種態様をとることができる。

(1) 前記微粒子は、径（たとえば、径の分布のピークに対応する径）が好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以下である。微粒子の径をこのレ

レベルのサイズにすることで、本発明の製造方法を微細なパターンを必要とする、たとえば半導体装置の製造に適用できる。

- (2) 前記微粒子は、電荷がチャージされていることが望ましい。たとえば、微粒子を上記(1)レベルのサイズにすることで、微粒子は、放電(グロー放電、アーク放電)や、供給管を流動する過程での摩擦によって、電荷がチャージされる。

このように原料種の微粒子に電荷がチャージされることで、活性種として微粒子の極性と異なるイオンを用いれば、両者は結合する。その結果、原料種は、活性種の運動エネルギーによって確実に基体に供給される。

- (3) 前記原料種の微粒子は、前記活性種を混合される前にガス化されることができる。この場合にも、成膜が可能である。

(4) 前記活性種は、ラジカルまたはイオンである。活性種としてイオンを用いる場合には、前記基体側をたとえばアース接続することで、活性種の運動エネルギーを増加させることができる。

- 前記活性種は、前記セラミックスの原材料の一部となる原料種のラジカルまたはイオン、不活性ガスを活性化させて得られるイオン、あるいは両者の混合であってもよい。前記活性種としては、前記セラミックスの原料種として用いる場合には、酸素または窒素のラジカルまたはイオンである。前記活性種としては、前記セラミックスの原料種として用いない場合には、アルゴンまたはキセノンなど不活性ガスのイオンである。

- 20 ラジカルあるいはイオンの発生方法としては、公知の方法、たとえば、RF(高周波)、マイクロ波、ECR(電子サイクロトロン共鳴)等を用いた活性種生成方法を例示できる。また、活性種は、ラジカル、イオンの他にオゾンであってもよい。オゾンは、オゾナーによって生成できる。

- (5) 少なくとも前記活性種は、加速された状態で前記基体に供給されることが望ましい。このように活性種を加速することで、結果的に原料種の運動エネルギーを制御でき、成膜速度の制御、膜のカバレッジ性の改善、およびプロセス温度の低下をさらに達成できる。活性種を加速する手段としては、電界を印加する方法、などを用いることができる。

(6) 前記セラミックス膜は、前記基体に対して部分的に形成することができる。すなわち、この製造方法においては、セラミックス膜の形成領域が基体に対して全面的でなく、部分的で微少な領域で行われる。この製造方法においては、以下の方法が好ましい。すなわち、前記基体の表面に、成膜されるセラミックスに対して親和性を有する膜形成部と、成膜されるセラミックスに対して親和性を有しない非膜形成部とを形成し、自己整合的に前記膜形成部にセラミックス膜を形成する工程を含むことができる。

(7) 前記セラミックス膜は、LSMCD法またはミストCVD法によって形成されることが望ましい。これらの方法は、上述の本発明の製造方法の特徴を達成する上で適している。

以上の本発明に係る好ましい態様は、以下に述べる本発明の製造装置についても適用できる。

(B) 製造装置

本発明の製造装置は、セラミックスが形成される基体の配置部と、前記基体を所定温度に加熱するための加熱部と、少なくともセラミックスの原材料の一部となる原料種を微粒子の状態で供給するための原料種供給部と、活性種を供給するための活性種供給部と、前記原料種供給部から供給された原料種と、前記活性種供給部から供給された活性種と、を混合するための混合部と、を含み、前記原料種および前記活性種を混合した後に前記基体に供給して成膜が行われる。前記原料種供給部は、原料貯蔵部と、原料貯蔵部から供給された原料を微粒子にするミスト化部と、を含むことができる。前記原料種供給部は、さらに加熱部を有し、該加熱部によって、前記微粒子をガス化させることができる。

さらに、前記基体の配置部は、前記加熱部を構成することができる。

(C) 本発明に係る製造方法によって得られたセラミックスは、各種の用途に利用される。以下に、代表的な用途の装置を挙げる。

(1) 本発明の製造方法によって形成された誘電体膜を含むキャパシタを有する、

半導体装置。このような半導体装置としては、誘電体膜として本発明の製造方法によって得られた高誘電率の常誘電体を用いたDRAM、強誘電体を用いたメモリ（FeRAM）装置がある。

（２）本発明の製造方法によって形成された誘電体膜を含む圧電素子。この圧電素子は、アクチュエータ、インクジェットプリンタのインク吐出ヘッドなどに適用できる。

図面の簡単な説明

図１は、本発明の製造方法および製造装置に係る第１の実施の形態を模式的に示す図である。

図２Ａ及びＢは、本発明の製造方法および製造装置に係る第２の実施の形態を模式的に示し、図２Ａは基体の平面図、図２Ｂは図２ＡのＡ－Ａ線に沿った断面図である。

図３は、本発明に係る第３の実施の形態の半導体装置（強誘電体メモリ装置）を模式的に示す断面図である。

15

詳細な説明

〔第１の実施の形態〕

図１は、本実施の形態に係るセラミックスの製造方法およびその製造装置を模式的に示す図である。

20 セラミックスの製造装置１０００は、本実施の形態においてはLSMCDあるいはミストCVDが可能な装置を用いている。セラミックスの製造装置１０００は、活性種供給部１００、原料種供給部２００、混合部３００および基体の載置部（配置部）４０を有する。

25 活性種供給部１００は、前述した各種の方法によって、ラジカルあるいはイオンなどの活性種を形成する。そして、活性種は、混合部３００に送られる。

活性種として、イオンを用いる場合には、たとえば Ar^+ 、 Kr^+ 、 Xe^+ 、 O^+ 、 O^{2+} 、 N^+ などを用いることができる。この場合、載置部４０をアース接続することで、これ

らの活性種の運動エネルギーを増加させることができる。そして、SBT、PZTなどの酸化物を形成する場合には、活性種として O^+ 、 O^{2+} を、窒化物を形成する場合には、活性種として N^+ を用いるか、あるいは不活性ガスのイオンと共用することで、結晶中に酸素や窒素を効率よく供給でき、さらに結晶性のよい強誘電体を得ることができる。

原料種供給部200は、有機金属、有機金属錯体などのセラミックス材料が収容される原料タンク210と、原料をミスト化するミスト化部220と、を有する。ミスト化された原材料は、混合部300に送られる。

原料種供給部200は、ミストCVD法によって成膜する場合には、ミスト化部220と混合部300との間にミストをガス化させるための加熱部230を配置することができる。この場合でも、LSMCD法とほぼ同様な膜質のセラミックス膜が形成できる。

混合部300は、原料種供給部200から供給された原料種および活性種供給部100から供給された活性種を混合できればよい。混合部300の先端にはメッシュ320が設けられている。

載置部（配置部）40は、基体10を所定温度に加熱するための加熱部を有する。さらに、載置部40は、アース接続されている。

また、本実施の形態では、載置部40をアース接続する代わりに、混合部300と載置部40との間に電界を印加することで、混合部300から載置部40に向かうイオン種（活性種および原料種）を加速させることもできる。たとえば、載置部40にバイアスをかけることで、プラスおよびマイナスの電荷を有するイオン種を加速できる。また、基体側がプラスまたはマイナスのいずれか一方になるように、電界を印加してもよい。この場合、基体側の極性は、活性種の極性と異なる極性に設定される。このように、少なくとも活性種を電界によって加速することで、原料種の微粒子を確実に基体10に供給できる。したがって、成膜速度の制御、結晶化に必要なプロセス温度をさらに低くできる。

このセラミックスの製造装置1000によれば、以下の手順でセラミックス膜20が形成される。

まず、原料種供給部200において、原料タンク210からミスト化部220に供給された原料は、たとえば超音波によって、好ましくは0.1 μ m以下、より好ましくは0.01 μ mに分布のピークを有する径のミスト（原料種の微粒子）となる。ミストの径は、超音波の周波数、投入パワーなどによって変えることができる。ミスト化部220で形成されたミストは、混合部300に送られる。そして、活性種供給部100から活性種が混合部300に送られる。混合部300において混合されたミストと活性種は、混合部300から基体10に向けて供給され、基体10上にセラミックス膜20が形成される。

本実施の形態によれば、高い運動エネルギーを持った活性種と、ミスト（原料種の微粒子）とを、基体10に接触させる前に混合部300で混合することで、原料種の微粒子に運動エネルギーを与えた状態で、これを基体10に堆積させることができる。そのため、前記原料種の微粒子が、0.01 μ m以下の径を有する場合でも、成膜速度を制御でき、ボトムあるいはサイドのカバレッジが良好なセラミックス膜20を形成できる。

また、活性種によって原料種の微粒子にエネルギーを与えることにより、膜の原子のマイグレーションエネルギーを高めることができる。その結果、活性種を供給しない場合に比べて、低温のプロセス温度で、たとえば結晶性などの膜質の優れたセラミックスを形成できる。

さらに、本実施の形態で得られる膜は、LSMCD法あるいはミストCVD法で形成され、微細かつ均一な分布の空乏を有するので、原子がマイグレーションしやすい。そのため、結晶化に必要なエネルギーを少なくでき、この点からもプロセス温度の低下を達成できる。

[第2の実施の形態]

図2Aおよび図2Bは、本発明の成膜方法の変形例を示す。図2Aは、基体10の平面を示し、図2Bは、図2AのA-A線に沿った断面を示す。

本実施の形態においては、セラミックスを基体10上に部分的に成膜する例を示している。このようにセラミックスを成膜する領域を部分的にすることで、全面的にセラミックスを形成する場合に比べて加熱を必要とする部分の容量が相対的に小さく

なるため、加熱処理に要するエネルギーを少なくすることができる。その結果、加熱プロセスの温度を相対的に下げることができる。したがって、この実施の形態によれば、活性種の供給によるプロセス温度の低下に加えて、さらにプロセス温度の低下を達成できる。

- 5 本実施の形態においては、基体10は、基体本体12と、基体本体12上に形成された、膜形成部14および非膜形成部16とを有する。

膜形成部14は、基体10上に形成されるセラミックスと化学的または物理的に親和性の高い材料、たとえばセラミックスの原料種に対して濡れ性がよい材料で構成される。これに対し、非膜形成部16は、成膜されるセラミックスと化学的または物理的に親和性が悪く、たとえばセラミックスの原料種に対して濡れ性が小さい材料で形成される。このように基体10の表面を構成することにより、セラミックス膜を形成したい領域に膜形成部14を配置することにより、所定パターンのセラミックス膜20が形成される。

- たとえば、セラミックス膜として強誘電体膜を形成する場合には、膜形成部14の材料として酸化イリジウムを用い、非膜形成部16の材料としてフッ素系化合物を用いることができる。

本実施の形態に係るセラミックスの製造方法は、強誘電体をはじめとする各種セラミックスに適用することができるが、特に層状ペロブスカイトに好適に用いることができる。層状ペロブスカイトは、C軸に対して直角方向において、酸素特にラジカル（原子状酸素）が拡散しやすいため、結晶化のための加熱プロセスにおいてセラミックス膜20の側面からのラジカルのマイグレーションが容易となる。その結果、ペロブスカイトの酸素欠損が少なくなり、分極特性が向上し、ファテグ特性、インプリント特性などの劣化が抑制される。

〔第3の実施の形態〕

- 25 図3は、本発明に係る製造方法によって得られた強誘電体を用いた半導体装置（強誘電体メモリ装置5000）の例を示す。

強誘電体メモリ装置5000は、CMOS領域R1と、このCMOS領域R1上に形成されたキャパシタ領域R2と、を有する。CMOS領域R1は、公知の構成を有

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022	2023	2024	2025	2026	2027	2028	2029	2030	2031	2032	2033	2034	2035	2036	2037	2038	2039	2040	2041	2042	2043	2044	2045	2046	2047	2048	2049	2050	2051	2052	2053	2054	2055	2056	2057	2058	2059	2060	2061	2062	2063	2064	2065	2066	2067	2068	2069	2070	2071	2072	2073	2074	2075	2076	2077	2078	2079	2080	2081	2082	2083	2084	2085	2086	2087	2088	2089	2090	2091	2092	2093	2094	2095	2096	2097	2098	2099	2100	2101	2102	2103	2104	2105	2106	2107	2108	2109	2110	2111	2112	2113	2114	2115	2116	2117	2118	2119	2120	2121	2122	2123	2124	2125	2126	2127	2128	2129	2130	2131	2132	2133	2134	2135	2136	2137	2138	2139	2140	2141	2142	2143	2144	2145	2146	2147	2148	2149	2150	2151	2152	2153	2154	2155	2156	2157	2158	2159	2160	2161	2162	2163	2164	2165	2166	2167	2168	2169	2170	2171	2172	2173	2174	2175	2176	2177	2178	2179	2180	2181	2182	2183	2184	2185	2186	2187	2188	2189	2190	2191	2192	2193	2194	2195	2196	2197	2198	2199	2200	2201	2202	2203	2204	2205	2206	2207	2208	2209	2210	2211	2212	2213	2214	2215	2216	2217	2218	2219	2220	2221	2222	2223	2224	2225	2226	2227	2228	2229	2230	2231	2232	2233	2234	2235	2236	2237	2238	2239	2240	2241	2242	2243	2244	2245	2246	2247	2248	2249	2250	2251	2252	2253	2254	2255	2256	2257	2258	2259	2260	2261	2262	2263	2264	2265	2266	2267	2268	2269	2270	2271	2272	2273	2274	2275	2276	2277	2278	2279	2280	2281	2282	2283	2284	2285	2286	2287	2288	2289	2290	2291	2292	2293	2294	2295	2296	2297	2298	2299	2300	2301	2302	2303	2304	2305	2306	2307	2308	2309	2310	2311	2312	2313	2314	2315	2316	2317	2318	2319	2320	2321	2322	2323	2324	2325	2326	2327	2328	2329	2330	2331	2332	2333	2334	2335	2336	2337	2338	2339	2340	2341	2342	2343	2344	2345	2346	2347	2348	2349	2350	2351	2352	2353	2354	2355	2356	2357	2358	2359	2360	2361	2362	2363	2364	2365	2366	2367	2368	2369	2370	2371	2372	2373	2374	2375	2376	2377	2378	2379	2380	2381	2382	2383	2384	2385	2386	2387	2388	2389	2390	2391	2392	2393	2394	2395	2396	2397	2398	2399	2400	2401	2402	2403	2404	2405	2406	2407	2408	2409	2410	2411	2412	2413	2414	2415	2416	2417	2418	2419	2420	2421	2422	2423	2424	2425	2426	2427	2428	2429	2430	2431	2432	2433	2434	2435	2436	2437	2438	2439	2440	2441	2442	2
--	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	------	---

5 用いることにより、キャパシタの大容量化が図れる。

さらに、本発明の製造方法によって形成される窒化物（窒化シリコン、窒化チタン）
10 は、たとえば、半導体装置のパッシベーション膜、ローカルインターコネクト膜などに適用できる。

請 求 の 範 囲

1. 少なくともセラミックスの原材料の一部となる原料種の微粒子と、活性種と、を混合した後に基体に供給して、該基体上にセラミックス膜を形成する工程を含む、セラミックスの製造方法。
- 5 2. 請求項1において、
前記微粒子は、径が0.1 μm 以下である、セラミックスの製造方法。
3. 請求項1において、
前記微粒子は、径が0.01 μm 以下である、セラミックスの製造方法。
4. 請求項1において、
- 10 前記微粒子は、電荷がチャージされている、セラミックスの製造方法。
5. 請求項1において、
前記原料種の微粒子は、前記活性種と混合される前にガス化される、セラミックスの製造方法。
6. 請求項1において、
- 15 前記活性種は、ラジカルまたはイオンである、セラミックスの製造方法。
7. 請求項6において、
前記活性種は、前記セラミックスの原材料の一部となる原料種のラジカルまたはイオンである、セラミックスの製造方法。
8. 請求項6において、
- 20 前記活性種は、酸素または窒素のラジカルまたはイオンである、セラミックスの製造方法。
9. 請求項6において、
前記活性種は、不活性ガスを活性化させて得られるイオンである、セラミックスの製造方法。
- 25 10. 請求項9において、
前記不活性ガスは、アルゴンまたはキセノンのイオンである、セラミックスの製造方法。
11. 請求項1において、

少なくとも前記活性種は、加速された状態で前記基体に供給される、セラミックスの製造方法。

12. 請求項1において、

前記セラミックス膜は、前記基体に対して部分的に形成される、セラミックスの製

5 造方法。

13. 請求項12において、

前記基体の表面に、成膜されるセラミックスに対して親和性を有する膜形成部と、
成膜されるセラミックスに対して親和性を有しない非膜形成部とを形成し、自己整合
的に前記膜形成部にセラミックス膜を形成する工程を含む、セラミックスの製造方法。

10 14. 請求項1において、

前記セラミックス膜は、LSMCD法またはミストCVD法によって形成される、
セラミックスの製造方法。

15. 請求項1において、

前記セラミックス膜は、誘電体からなる、セラミックスの製造方法。

15 16. 請求項15において、

前記誘電体は、600℃以下の温度で形成される、セラミックスの製造方法。

17. 請求項15において、

前記誘電体は、450℃以下の温度で形成される、セラミックスの製造方法。

18. セラミックスが形成される基体の配置部と、

20 前記基体を所定温度に加熱するための加熱部と、

少なくともセラミックスの原材料の一部となる原料種を微粒子の状態で供給する
ための原料種供給部と、

活性種を供給するための活性種供給部と、

前記原料種供給部から供給された原料種と、前記活性種供給部から供給された活性

25 種と、を混合するための混合部と、を含み、

前記原料種および前記活性種を混合した後に前記基体に供給して成膜が行われる、
セラミックスの製造装置。

19. 請求項18において、

前記成膜は、LSMCD法またはミストCVD法によって行われる、セラミックスの製造装置。

20. 請求項18において、

前記原料種供給部によって、前記微粒子は、径が $0.1\mu\text{m}$ 以下にされる、セラミックスの製造装置。

21. 請求項18において、

前記原料種供給部によって、前記微粒子は、径が $0.01\mu\text{m}$ 以下にされる、セラミックスの製造装置。

22. 請求項18において、

10 前記微粒子は、電荷がチャージされている、セラミックスの製造装置。

23. 請求項18において、

前記原料種供給部は、原料貯蔵部と、原料貯蔵部から供給された原料を微粒子にするミスト化部と、を含む、セラミックスの製造装置。

24. 請求項23において、

15 前記原料種供給部は、さらに加熱部を有し、該加熱部によって、前記微粒子をガス化させる、セラミックスの製造装置。

25. 請求項18において、

前記活性種供給部は、ラジカルまたはイオンからなる活性種を供給する、セラミックスの製造装置。

20 26. 請求項25において、

前記活性種は、前記セラミックスの原材料の一部となる原料種のラジカルまたはイオンである、セラミックスの製造装置。

27. 請求項25において、

25 前記活性種は、酸素または窒素のラジカルまたはイオンである、セラミックスの製造装置。

28. 請求項25において、

前記活性種は、不活性ガスを活性化させて得られるイオンである、セラミックスの製造装置。

Variable	Mean	SD	Min	Max
Age	38.5	10.2	22	65
Gender	1.2	0.4	1	2
Marital status	1.8	0.4	1	3
Education	12.5	1.5	9	16
Income	15.2	3.5	10	25
Occupation	1.5	0.5	1	3
Health status	1.5	0.5	1	3
Stress level	2.5	1.0	1	4
Life satisfaction	3.5	1.0	1	5
Resilience	2.5	1.0	1	4
Optimism	3.5	1.0	1	5
Gratitude	3.5	1.0	1	5
Forgiveness	3.5	1.0	1	5
Compassion	3.5	1.0	1	5
Kindness	3.5	1.0	1	5
Generosity	3.5	1.0	1	5
Patience	3.5	1.0	1	5
Humility	3.5	1.0	1	5
Modesty	3.5	1.0	1	5
Shyness	3.5	1.0	1	5
Introversion	3.5	1.0	1	5
Neuroticism	3.5	1.0	1	5
Extraversion	3.5	1.0	1	5
Agreeableness	3.5	1.0	1	5
Conscientiousness	3.5	1.0	1	5
Openness	3.5	1.0	1	5
Stability	3.5	1.0	1	5
Emotion regulation	3.5	1.0	1	5
Attention	3.5	1.0	1	5
Memory	3.5	1.0	1	5
Reasoning	3.5	1.0	1	5
Imagination	3.5	1.0	1	5
Intuition	3.5	1.0	1	5
Insight	3.5	1.0	1	5
Wisdom	3.5	1.0	1	5
Knowledge	3.5	1.0	1	5
Skills	3.5	1.0	1	5
Abilities	3.5	1.0	1	5
Talents	3.5	1.0	1	5
Gifts	3.5	1.0	1	5
Strengths	3.5	1.0	1	5
Weaknesses	3.5	1.0	1	5
Flaws	3.5	1.0	1	5
Defects	3.5	1.0	1	5
Shortcomings	3.5	1.0	1	5
Limitations	3.5	1.0	1	5
Constraints	3.5	1.0	1	5
Barriers	3.5	1.0	1	5
Obstacles	3.5	1.0	1	5
Challenges	3.5	1.0	1	5
Problems	3.5	1.0	1	5
Difficulties	3.5	1.0	1	5
Struggles	3.5	1.0	1	5
Trials	3.5	1.0	1	5
Tests	3.5	1.0	1	5
Exercises	3.5	1.0	1	5
Practices	3.5	1.0	1	5
Activities	3.5	1.0	1	5
Pastimes	3.5	1.0	1	5
Hobbies	3.5	1.0	1	5
Interests	3.5	1.0	1	5
Pursuits	3.5	1.0	1	5
Vocations	3.5	1.0	1	5
Careers	3.5	1.0	1	5
Professions	3.5	1.0	1	5
Occupations	3.5	1.0	1	5
Jobs	3.5	1.0	1	5
Work	3.5	1.0	1	5
Employment	3.5	1.0	1	5
Business	3.5	1.0	1	5
Industry	3.5	1.0	1	5
Field	3.5	1.0	1	5
Sector	3.5	1.0	1	5
Area	3.5	1.0	1	5
Domain	3.5	1.0	1	5
Field of study	3.5	1.0	1	5
Discipline	3.5	1.0	1	5
Subject	3.5	1.0	1	5
Topic	3.5	1.0	1	5
Issue	3.5	1.0	1	5
Matter	3.5	1.0	1	5
Thing	3.5	1.0	1	5
Object	3.5	1.0	1	5
Entity	3.5	1.0	1	5
Item	3.5	1.0	1	5
Element	3.5	1.0	1	5

30. 請求項18において、
5 少なくとも前記活性種は、加速された状態で前記基体に供給される、セラミックスの製造装置。

5 少なくとも前記活性種は、加速された状態で前記基体に供給される、セラミックスの製造装置。

31. 請求項1～17に記載の製造方法によって形成された誘電体膜を含むキヤパを有する、半導体装置。

10 CMOS領域と、強誘電体を含むキャパシタを有するキャパシタ領域と、を含む、
強誘電体メモリ装置。

10 CMOS領域と、強誘電体を含むキャパシタを有するキャパシタ領域と、を含む、
強誘電体メモリ装置。

33. 請求項1～17に記載の製造方法によって形成された誘電体膜を含む圧電素子。

要 約 書

セラミックスの製造方法は、少なくともセラミックスの原材料の一部となる原料種の微粒子と、活性種と、を混合した後に基体に供給して、基体上にセラミックス膜を形成する工程を含む。製造装置は、基体の加熱部を兼ねる配置部と、原料種を微粒子の状態で供給するための原料種供給部と、活性種を供給するための活性種供給部と、原料種と活性種とを混合するための混合部と、を有する。

Variable	Mean	Standard deviation	Minimum	Maximum	Skewness	Kurtosis	Jarque-Bera	Probability
lnGDP	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP2	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP3	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP4	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP5	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP6	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP7	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP8	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP9	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP10	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP11	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP12	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP13	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP14	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP15	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP16	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP17	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP18	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP19	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP20	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP21	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP22	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP23	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP24	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP25	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP26	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP27	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP28	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP29	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP30	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP31	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP32	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP33	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP34	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP35	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP36	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP37	10.000	0.500	9.000	11.000	0.000	3.000	0.000	1.000
lnGDP38	1							

FIG. 1

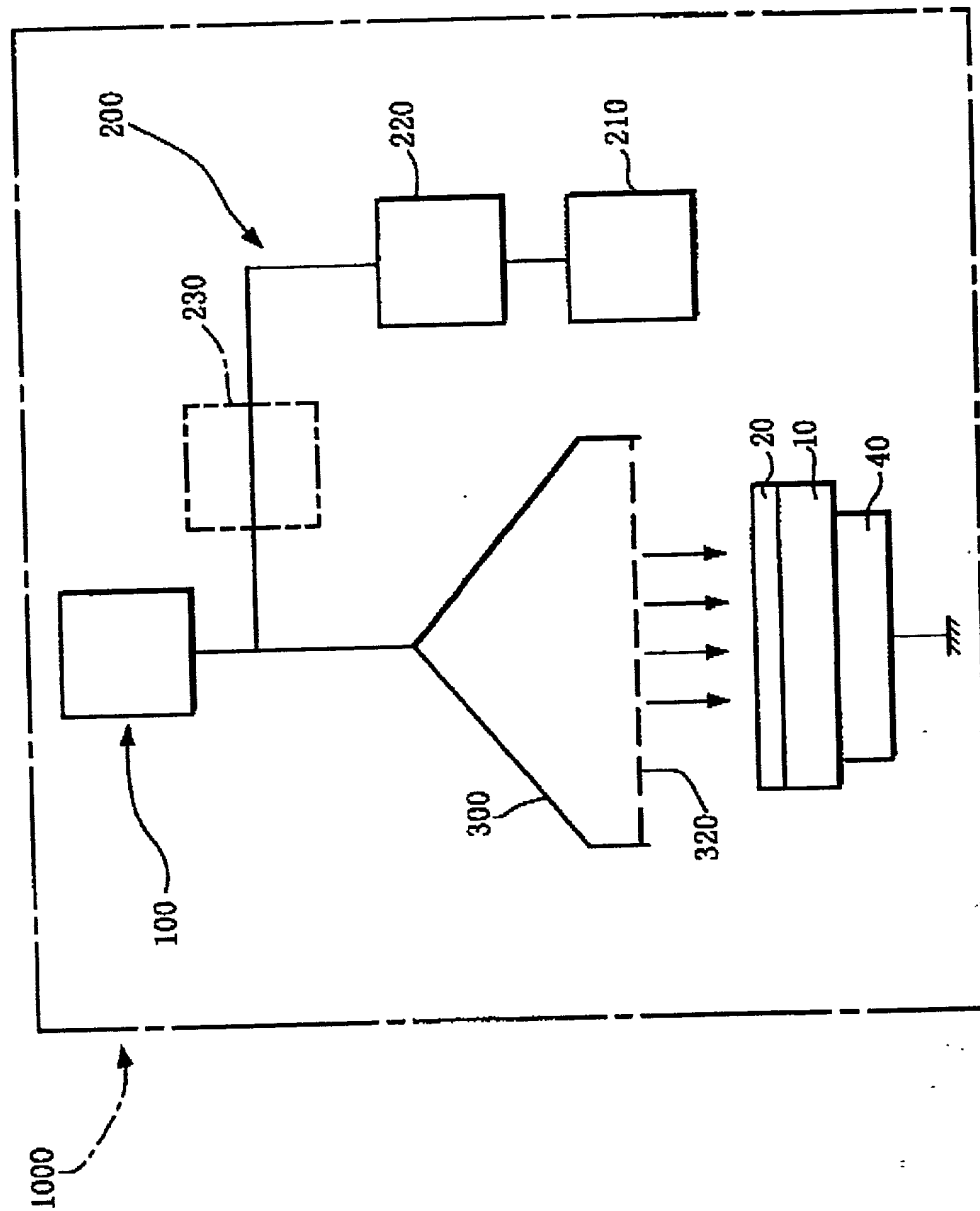


FIG. 2A

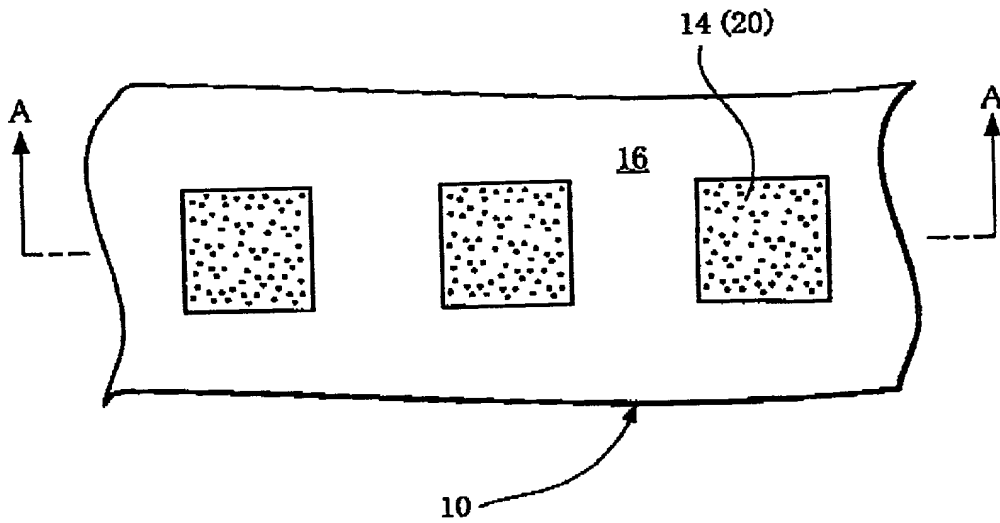


FIG. 2B

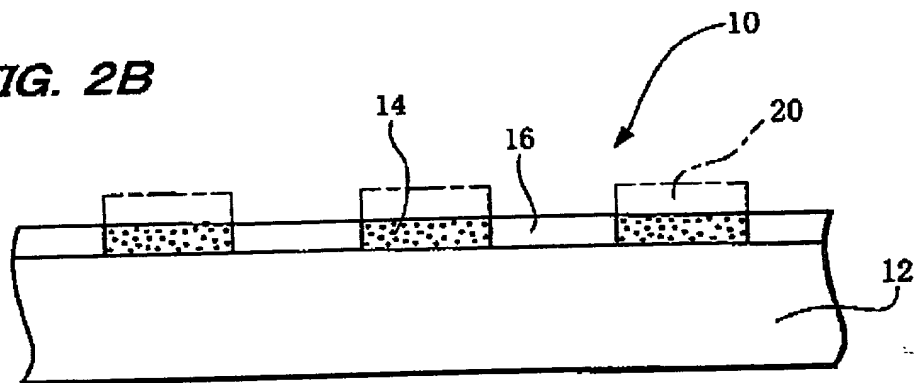


FIG. 3

